

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2005 年10 月27 日 (27.10.2005)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2005/100457 A1

- (51) 国際特許分類: C08J 5/18, B29C 55/02, C08L 35/00, G02B 5/30 // C08L 25:12
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/002365
- (22) 国際出願日: 2005 年2 月9 日 (09.02.2005)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2004-103526 2004 年3 月31 日 (31.03.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 帝人デュポンフィルム株式会社 (TEIJIN DUPONT FILMS JAPAN LIMITED) [JP/JP]; 〒100-0011 東京都千代田区 内幸町 2 丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 小野 光正 (ONO, Mitsumasa) [JP/JP]; 〒503-0123 岐阜県安八郡安八町南條 1 3 5 7 番地 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP).
- (74) 代理人: 大島 正孝 (OHSHIMA, Masataka); 〒160-0004 東京都新宿区四谷四丁目 3 番地 福屋ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ORIENTED FILM, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME AND LAMINATE THEREOF

(54) 発明の名称: 延伸フィルム、その製造方法および積層体

(57) Abstract: An oriented film having its optical anisotropy controlled that is suitable for use in liquid crystal displays as a protective film for polarizing plate with phase-contrast function, or retardation sheet; a process for producing the same; and a laminate utilizing the oriented film. There is provided oriented film (X) obtained by forming a resin composition into a film according to melt extrusion casting and drawing the film in at least one direction, wherein: (1) the resin composition comprises specified maleimide-olefin copolymer (A) and acrylonitrile-styrene copolymer (B) containing 21 to 45 wt.% of acrylonitrile units, in which the content of component (A) is in the range of 50 to 99 wt.% while the content of component (B) is in the range of 1 to 50 wt.%; (2) the maximum phase contrast (Rp) at 550 nm along in-plane direction satisfies the relationship of the formula  $10 \text{ nm} < R_p \leq 400 \text{ nm}$ , and; (3) the phase contrast (Rth) at 550 nm along thickness direction satisfies the relationship of the formula  $0 \text{ nm} < |R_{th}| \leq 400 \text{ nm}$ .

(57) 要約: 本発明の目的は、位相差板、位相差機能付き偏光板保護フィルムとして液晶表示装置に用いるのに好適な、光学異方性が制御された延伸フィルム、その製造方法およびそれを用いた積層体を提供することにある。本発明は、樹脂組成物を、溶融押出キャスティングにより製膜した後、少なくとも一方向に延伸されてなる延伸フィルム(X)であり、(1)樹指組成物は、特定のマレイミド・オレフィン共重合体(A)およびアクリロニトリル単位を21~45重量%含むアクリロニトリル・スチレン共重合体(B)からなり、Aの含有量は50重量%以上99重量%以下で、Bの含有量は1重量%以上50重量%以下であり、(2)面内方向の550nmにおける最大位相差(Rp)が下記式 $10\text{nm} < R_p \leq 400\text{nm}$ を満たし、(3)厚み方向の550nmにおける位相差(Rth)が、下記式 $0\text{nm} < |R_{th}| \leq 400\text{nm}$ を満たす延伸フィルムである。

WO 2005/100457 A1

## 明 細 書

## 延伸フィルム、その製造方法および積層体

## 技術分野

- 5      本発明は延伸フィルム、その製造方法および積層体に関する。更に詳しくは、液晶表示装置の位相差板、位相差機能付き偏光板保護フィルムとして用いるのに好適な延伸フィルムおよびその製造方法に関する。さらに本発明は、該延伸フィルムを構成部材とする積層体に関する。

## 10    背景技術

液晶表示装置は、基本的には、液晶セルとその両側に配置された偏光板、偏光板と液晶セルとの間に配置された位相差板から構成される。

- 偏光板の役割は偏光方向の光を通過させ、偏光方向以外の光を遮断することであり、ヨウ素をドーブした延伸ポリビニルアルコール（PVA）フィルムが偏光子としてその役割を担っている。偏光子は物理的な強度が弱いことから偏光子の両面には保護フィルムが貼り合わされている。これら偏光子と保護フィルムとを水系接着剤で貼合せるため、保護フィルムとして親水性の高いセルローストリアセテート（TAC）フィルムが用いられている。
- 15

- しかし、TACフィルムは透湿度が高くバリア性に劣るため、長期にわたり特に高温高湿環境下で使用すると、偏光子中のヨウ素がTACフィルムを通して昇華脱離消失してしまい偏光性能が低下するという欠点がある。
- 20

- 位相差板が用いられるのは、液晶素子が有する複屈折によって発生する位相差を小さくし、視野角特性を高めるためである。かかる位相差板には、耐熱性および透明性に優れ、かつ延伸により大きな複屈折を発現させ得るポリカーボネート（PC）フィルムや、ノルボルネンなどをモノマー成分とする環状オレフィンポリマー（COP）フィルムなどが使用されている。
- 25

近年、液晶表示装置の価格を低下させ、また厚みを薄くするため、使用する光学部材の機能を複合化させ、部材数を低減させる試みが多くなされている。その

一つとして、偏光板の保護フィルムとして位相差機能付きフィルムを用い、位相差板なしでも視野角特性に優れた液晶表示装置を得ることが提案されている。

- かかる位相差機能付きフィルムとしてノルボルネンなどをモノマー成分とする環状オレフィンポリマー（COP）フィルムや、ポリカーボネート（PC）フィルムが検討されている。しかし、位相差機能付きフィルムとしてPCフィルムを用いた場合、PVAとの接着性および耐溶剤性の面から使用可能な接着剤の種類が限定されるという問題がある。また、COPフィルムは、透湿度が低くバリア性が高すぎるため、偏光板製造工程においてPVA中に残留した水分を逃がすことができず、ヨウ素などが水溶液の状態で存在してしまい、これらのフィルムを用いた偏光板を高温環境下で長期にわたり使用すると、偏光子中のヨウ素が分解消失してしまい偏光性能が経時で低下するという欠点がある。

日本国特許第3,414,083号公報には、マレイミド・オレフィン系共重合体および特定の組成からなるアクリロニトリル・スチレン共重合体からなる樹脂組成物が記載されている。

- 特開2000-80239号公報および特開2000-80240号公報には、上述の樹脂組成物からなる位相差の小さい透明フィルムが開示されている。

- 一方、特開2002-341140号公報には、正の光弾性係数を有する高分子と負の光弾性係数を有する高分子よりなる高分子組成物からなる位相差フィルムが開示されている。そして、マレイミド・オレフィン系共重合体とアクリロニトリル・スチレン共重合体の組み合わせが好適な例として挙げられている。またフィルム製膜方法としては、キャスト法（溶液流延法）、熔融押出法などの公知公用の方法を用いることができることが開示されている。

特開2002-243943号公報には、位相差の小さい偏光子保護フィルムが開示されている。

25

#### 発明の開示

本発明の目的は、液晶表示装置の位相差板、位相差機能付き偏光板保護フィルムとして用いるのに好適な、光学異方性が制御された延伸フィルムおよびその製

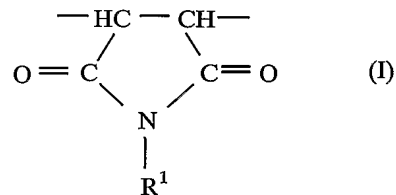
造方法を提供することにある。

さらに本発明の目的は、該延伸フィルムを構成部材とする積層体であって、偏光板として用いるのに適した積層体を提供することにある。

- 5 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、特定の組成からなるマレイミド・オレフィン共重合体およびアクリロニトリル・スチレン共重合体を特定の配合比で配合した樹脂組成物を用いることによって、熔融押出キャストリングによる製膜方法であっても特定の位相差が発現し、光学異方性が適切に制御された延伸フィルムが得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

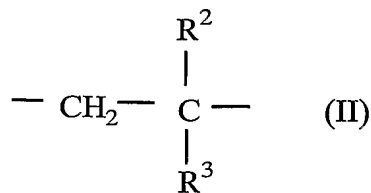
- すなわち本発明は、樹脂組成物を、熔融押出キャストリングにより製膜した後、  
10 少なくとも一方向に延伸されてなる延伸フィルム（X）であり、

（1）樹脂組成物は、下記式（I）



式中、 $\text{R}^1$ は、水素原子、炭素数1～6のアルキル基または1価の芳香族炭化水素基である、

- 15 で表される繰り返し単位40～60モル%と、  
下記式（II）



式中、 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～6のアルキル基である、

- 20 で表される繰り返し単位60～40モル%とからなるマレイミド・オレフィン共重合体（A）およびアクリロニトリル単位を21～45重量%含むアクリロニトリル・スチレン共重合体（B）からなり、

Aの含有量は50重量%以上99重量%以下で、Bの含有量は1重量%以上50重量%以下であり、

(2) 面内方向の550nmにおける最大位相差(R<sub>p</sub>)が下記式

$$10\text{ nm} < R_p \leq 400\text{ nm}$$

5 を満たし、

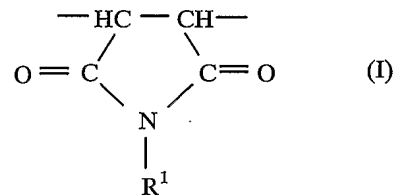
(3) 厚み方向の550nmにおける位相差(R<sub>t h</sub>)が、下記式

$$0\text{ nm} < |R_{t h}| \leq 400\text{ nm}$$

を満たす延伸フィルムである。

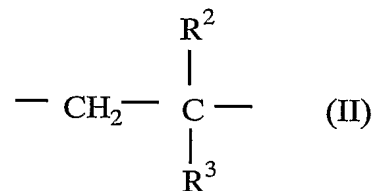
また本発明は、樹脂組成物を、熔融押出キャストイングにより製膜した後、少なくとも一方向に延伸することを含む延伸フィルムの製造方法であり、

10 (1) 樹脂組成物は、下記式(I)



式中、R<sup>1</sup>は、水素原子、炭素数1～6のアルキル基または1価の芳香族炭化水素基である、

15 で表される繰り返し単位40～60モル%と、  
下記式(II)



式中、R<sup>2</sup>およびR<sup>3</sup>は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～6のアルキル基である、

20 で表される繰り返し単位60～40モル%とからなるマレイミド・オレフィン共重合体(A)およびアクリロニトリル単位を21～45重量%含むアクリロニトリル・スチレン共重合体(B)からなり、

Aの含有量は50重量%以上99重量%以下で、Bの含有量は1重量%以上50重量%以下であり、

(2) 延伸倍率は、下記式

$$R^{MD} > R^{TD} \text{ または } R^{TD} > R^{MD}$$

5 式中、 $R^{MD}$ は縦延伸倍率、 $R^{TD}$ は横延伸倍率である、  
を満たす延伸フィルムの製造方法である。

また本発明は、上記延伸フィルム(X)およびその上に設けられた偏光子からなる積層体を包含する。

さらに本発明は、液晶セルおよびその両面に配置された該積層体からなる液晶  
10 表示装置を包含する。

本発明の延伸フィルムは、所定の光学異方性を有し、透湿度が所定の範囲にある。よって、位相差板、位相差機能付き偏光板保護フィルムとして液晶表示装置に好適に用いることができる。

また本発明の製造方法によれば、該延伸フィルムを生産性良く製造することが  
15 できる。

また本発明の積層体は、耐久性、視野角特性に優れ、液晶表示装置の偏光板として好適である。

発明を実施するための最良の形態

20 <延伸フィルム(X)>

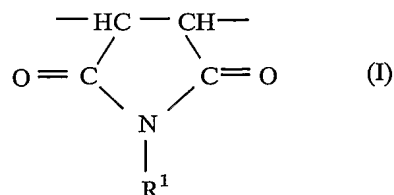
(樹脂組成物)

樹脂組成物は、50重量%以上99重量%以下のマレイミド・オレフィン共重合体(共重合体(A)と略記することがある)と1重量%以上50重量%以下のアクリロニトリル・スチレン共重合体(共重合体(B)と略記することがある)  
25 とからなる。

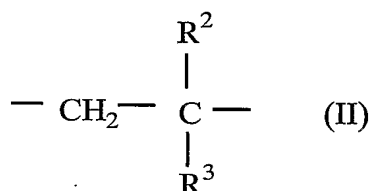
(マレイミド・オレフィン共重合体)

共重合体(A)は、40～60モル%の下記式(I)で表される繰り返し単位(以下、単位(I)と略記することがある)と、60～40モル%の式(II)で表される繰

り返し単位（以下、単位（II）と略記することがある）とからなる。



- 式（I）中、 $\text{R}^1$ は、水素原子、炭素数1～6のアルキル基または1価の芳香族炭化水素基である。炭素数1～6のアルキル基として、メチル基、エチル基、
- 5 プロピル基、ブチル基などが挙げられる。1価の芳香族炭化水素基として、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、ピリジル基などが挙げられる。



- 式(II)中、 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～6のアルキル基を示す。炭素数1～6のアルキル基として、メチル基、エチル基、
- 10 プロピル基などが挙げられる。 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、それぞれがメチル基であることが好ましい。

単位(I)と単位(II)からなる共重合体（A）は、例えば、マレイミド類とオレフィン類とのラジカル共重合反応により得ることができる。

- 単位(I)を与える化合物としては、マレイミド、N-メチルマレイミド、N-エチルマレイミド、N-n-プロピルマレイミド、N-i-プロピルマレイミド、
- 15 N-n-ブチルマレイミド、N-i-ブチルマレイミド、N-s-ブチルマレイミド、N-t-ブチルマレイミド、N-n-ペンチルマレイミド、N-n-ヘキシルマレイミド、N-フェニルマレイミド、ナフチルマレイミド、アントラセニルマレイミド、ピリジルマレイミド、ピリミジニルマレイミド、N-シクロプロ
- 20 ピルマレイミド、N-シクロブチルマレイミド、N-シクロヘキシルマレイミド等のマレイミド類が例示され、耐熱性、機械特性および透明性の点から特にN-メチルマレイミドまたはN-フェニルマレイミドが好ましい。さらに、これら化

化合物は1種または2種以上組み合わせて用いることができる。

単位(II)を与える化合物としては、イソブテン、2-メチルー1-ブテン、2-メチルー1-ペンテン、2-メチルー1-ヘキセン等のオレフィン類が例示でき、このうち耐熱性、機械特性および透明性の点から特にイソブテンが好ましい。また、これら化合物は1種または2種以上組み合わせて用いることができる。

単位(I)の含有量は、共重合体(A)の繰り返し単位の全モル数を基準として40～60モル%であり、耐熱性および機械特性の点から45～55モル%が好ましい。単位(I)の含有量が60モル%を越える場合には得られる組成物は脆くなり、一方、40モル%未満の場合は得られる組成物の耐熱性が低下する。

10 また単位(II)の含有量は、共重合体(A)の繰り返し構造単位の全モル数を基準として60～40モル%であり、耐熱性および機械特性の点から55～45モル%が好ましい。単位(II)の含有量が60モル%を越える場合には得られる組成物は耐熱性が低下することがあり、一方、40モル%未満の場合は得られる組成物は脆くなる。

15 これらモノマーの重合は公知の重合法、例えば塊状重合法、溶液重合法、懸濁重合法および乳化重合法のいずれもが採用可能であるが、得られる組成物の透明性、色調の点から特に沈殿重合法が好ましい。

共重合体(A)の数平均分子量は、 $1 \times 10^3 \sim 5 \times 10^6$ であることが好ましい。かかる数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ(GPC)により求めることができる。マレイミド・オレフィン共重合体の数平均分子量が、 $1 \times 10^3$ に満たない場合、得られるフィルムが脆くなる傾向にあり、一方 $5 \times 10^6$ を超える場合は、得られるフィルムの表面性が悪化する傾向にある。

(アクリロニトリル・スチレン共重合体)

共重合体(B)は、共重合体(B)の重量を基準としてアクリロニトリル成分を21～45重量%含有する。かかる範囲を外れると共重合体(A)と共重合体(B)との相溶性が低下するため、得られる樹脂組成物は不透明となり、また耐熱性も低下するため好ましくない。アクリロニトリル成分の含有量が30～45重量%であることが好ましい



共重合体（B）の数平均分子量は、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^6$ であることが好ましい。かかる数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ（GPC）により求めることができる。

（樹脂組成物中の共重合体（A）および（B）の含有量）

- 5 樹脂組成物中の共重合体（A）の含有量は50重量%以上99重量%以下で、共重合体（B）の含有量は1重量%以上50重量%以下である。共重合体（A）と共重合体（B）との含有量を前記範囲内とすることで、正の複屈折を有する共重合体（A）と、負の複屈折を有する共重合体（B）とのバランスが適正なものとなり、延伸フィルムとした場合に本発明で規定した位相差値をとることが可能となる。
- 10

また、共重合体（A）の割合が下限に満たない場合には得られる樹脂組成物の耐熱性が低下し、一方、共重合体（A）が上限を超える場合は得られる組成物の加工温度が高くなり、共重合体（B）の熱劣化が起こるため、いずれも好ましくない。

- 15 樹脂組成物中の、共重合体（A）の含有量は75重量%を超え99重量%以下で、共重合体（B）の含有量は1重量%以上25重量%未満であることが好ましい。また、共重合体（A）の含有量は50重量%を超え65重量%以下で、共重合体（B）の含有量は35重量%以上50重量%未満であることが好ましい。

- 樹脂組成物には本発明の趣旨を超えない範囲で、その他のポリマー、安定剤、  
20 紫外線吸収剤、加工助剤、難燃剤、帯電防止剤等を含有することもできる。

（位相差）

本発明の延伸フィルム（X）は、（2）面内方向の550 nmにおける最大位相差（ $R_p$ ）が下記式

$$10 \text{ nm} < R_p \leq 400 \text{ nm}$$

- 25 を満たす。

また（3）厚み方向の550 nmにおける位相差（ $R_{th}$ ）が、下記式

$$0 \text{ nm} < |R_{th}| \leq 400 \text{ nm}$$

を満たす。

R<sub>p</sub>が下限に満たない場合、液晶素子の複屈折の補償が十分ではないことがあり、R<sub>p</sub>が上限を超える場合もまた、液晶素子の複屈折の補償が十分ではないことがある。R<sub>t h</sub>が上限を超える場合は、液晶素子の厚み方向に起因して発生する複屈折の補償が十分ではないことがある。

- 5 R<sub>p</sub>およびR<sub>t h</sub>が上記の範囲にあることにより、特に、位相差板や位相差機能つき偏光板支持体などの光学部材として用いる際に、液晶素子の複屈折を好ましい状態で補償することが可能となり、得られた液晶ディスプレイなどの表示機器は、優れた視野角特性を有する。

また、R<sub>p</sub>が、下記式

- 10  $75\text{ nm} \leq R_p \leq 400\text{ nm}$ を満たすことが好ましい。

また、R<sub>p</sub>の波長分散特性は、550 nmにおける最大位相差を1とした場合に、400 nm、700 nmの両方において、0.4～1.7、好ましくは、0.6～1.5の範囲にあることが、透過光の着色を防止する観点から好ましい。

(厚み)

- 15 本発明における延伸フィルムの厚みは、0.5～400 μmであることが好ましく、より好ましくは5～200 μm、さらに好ましくは5～100 μmの範囲である。フィルム厚みが400 μmを超える場合は、ディスプレイの軽量薄膜化、低コスト化の傾向に逆行するだけでなく、吸光、散乱などによる光線透過率の低下の原因ともなりうる。また、フィルム厚みが0.5 μm未満の場合は、ハンド
- 20 リング性が低下することがある。

(延伸フィルム (X-a))

延伸フィルム (X) は、

(1-a)樹脂組成物中の、共重合体 (A) の含有量は75重量%を超え99重量%以下で、共重合体 (B) の含有量は1重量%以上25重量%未満であり、

- 25 (2-a)R<sub>p</sub>が下記式

$$10\text{ nm} < R_p \leq 250\text{ nm}$$

を満たし、

(3-a)R<sub>t h</sub>が、下記式

$$0 \text{ nm} < R_{th} \leq 400 \text{ nm}$$

を満たす延伸フィルム (X-a) であることが好ましい。

- R<sub>p</sub>は、好ましくは13～220 nm、さらに好ましくは15～200 nm、さらに好ましくは75～200 nmである。また、R<sub>th</sub>は、好ましくは5～350 nm、さらに好ましくは10～300 nmである。

- 延伸フィルム (X-a) は、R<sub>p</sub>およびR<sub>th</sub>が上記の範囲にあることにより、液晶素子の複屈折を好ましい状態で補償する。従って、光学部材の構成部材のうち、特に位相差板や位相差機能つき偏光板支持体などのような、透過光に生じる位相差を適正な範囲内に制御し得る光学異方性が必要とされる光学部材に好適に用いることができる。

延伸フィルム (X-a) の共重合体 (A) 中の単位 (I) のR<sup>1</sup>は、炭素数1～6のアルキル基、より具体的にはメチル基であることが好ましい。

(延伸フィルム (X-b))

- また、(1-b)樹脂組成物中の、Aの含有量は50重量%を超え65重量%以下で、Bの含有量は35重量%以上50重量%未満であり、(2-b)R<sub>p</sub>が下記式

$$10 \text{ nm} < R_p \leq 400 \text{ nm}$$

を満たし、

(3-b)R<sub>th</sub>が、下記式

- 20  $0 \text{ nm} < |R_{th}| \leq 400 \text{ nm}$

を満たす延伸フィルム (X-b) が好ましい。

R<sub>p</sub>は、好ましくは13～350 nm、さらに好ましくは15～300 nm、さらに好ましくは75～300 nmである。また、R<sub>th</sub>は、好ましくは-350～350 nm、さらに好ましくは-300～300 nmである。

- 25 延伸フィルム (X-b) は、下記式

$$n_y < n_z < n_x, \text{ および}$$

$$0.3 \leq \{(n_x - n_z) / (n_x - n_y)\} \leq 0.9$$

式中、n<sub>x</sub>は550 nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率、

$n_y$ は550nmにおける面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率、  
 $n_z$ は550nmにおける厚み方向の屈折率をそれぞれ表す、  
を満たすことが好ましい。

延伸フィルム(X-b)の共重合体(A)中の単位(I)の $R^1$ は、1価の芳香族炭化水素基であることが好ましい。1価の芳香族炭化水素基として、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、ピリジル基などが挙げられる。

#### (透湿度)

本発明の延伸フィルムの透湿度は、JIS-Z-0208に準拠し、塩化カルシウムカップ法により、40℃、90%RHの温湿度条件において、5~250  
10  $g/(m^2 \cdot \text{日})$ 、好ましくは10~200  $g/(m^2 \cdot \text{日})$ の範囲である。

透湿度が250  $g/(m^2 \cdot \text{日})$ を超える場合、バリア性に劣り、経時で偏光子中のヨウ素が延伸フィルムを通して昇華脱離消失してしまい、偏光板の偏光性能が低下することがある。一方、透湿度が5  $g/(m^2 \cdot \text{日})$ 未満では、ポリビニルアルコール(PVA)中の残留水分を逃がすことができず、ヨウ素が水溶液  
15 の状態で存在するため、経時で偏光子中のヨウ素が分解消失してしまい、偏光板の偏光性能が経時で低下することがある。従って、透湿度が5~250  $g/(m^2 \cdot \text{日})$ である延伸フィルムが好ましい。

#### (粗大筋状隆起)

本発明の延伸フィルムは、表面における粗大筋状隆起の数が、フィルム連続製  
20 膜方向に垂直な方向(横方向)での幅1m当たり1本以下であることが好ましい。粗大筋状隆起数がこれを超えるフィルムは、ディスプレイを構成する光学部材として使用した場合、透過すべき光を、散乱、吸収させてしまう。その結果、ディスプレイの輝度、画像品位が低下する。特に、液晶TVなどの大型ディスプレイの製造においては、フィルム中の粗大筋状隆起の存在する部分は使用できないため、製品歩留を著しく低下させることとなり、製造コストの面において好ましく  
25 ない。また、各光学部材は、積層されてディスプレイを構成するが、この光学部材を構成するフィルムに上記筋状隆起があると、正常な積層の障害となりうる。

ここで、粗大筋状隆起とは、高さ10  $\mu m$ 以上、幅0.3mm以上、長さ5c

m以上の、フィルムの押出方向（連続製膜方向）に沿って延びる隆起であり、連続的、あるいは断続的なものかは問わない。

- 上述の粗大筋状隆起の発生は、原料を加熱溶融した際の原料の劣化に起因することが多く、特に、押出ダイのスリットのリップ部に劣化した原料が少量付着すること
- 5 ことに起因する場合が多い。通常、この筋状隆起は、経時でその大きさを成長させ、フィルム外観上の大きな欠陥となる。

粗大筋状隆起の発生を防止させるための手段としては、溶融押出の際に、

- (1) 溶融温度をできるだけ低くすること、
- (2) 原料供給から溶融押出までの工程を真空下、あるいは窒素などの不活性気
- 10 体雰囲気下とすること、
- (3) 押出ダイのスリットのリップ部の素材や形状を劣化原料が付着し難いものとし、リップ部に筋状突起の原因となる物質が付着するのを防ぐこと、
- (4) リップ部に溶融原料樹脂が接触しないようにすること、などを例示することができる。

- 15 中でも、リップ部に溶融原料樹脂が接触しないようにする手段として、溶融押出製膜するフィルムを少なくとも3層から構成されるものとするのは好ましい方法である。すなわち、製品として使用する本発明のフィルムを最表層でない層とし、最表層には、製品として使用される際に剥離して使用する、保護フィルムの役割を果たす層を設けることで、実際に製品として使用するフィルムの原料を、
- 20 リップ部に接触させずに溶融押出させることが可能となる。

- フィルム表面の粗大筋状隆起の数は、次の方法によって測定評価することができる。まずフィルムを任意の位置で、フィルム連続製膜方向と製膜方向に垂直な方向に沿った正方形（50 cm×50 cm）にサンプリングする。そして連続製膜方向に沿った5 cmおきに、製膜方向に垂直な方向の全幅でフィルムの厚みを
- 25 測定する。

得られた厚みプロファイルの中に隆起部がある場合に、その高さ、幅と長さは次のように定義する。(i) 隆起頂点から該プロファイル内の隆起部を除くフィルム平面に平行な基準線に下した垂線上の、隆起頂点から隆起両直隣最低部の接線

までの距離を隆起の「高さ」とする。(i i) プロファイル中で隆起部の両側の稜線において、傾きが最大となるそれぞれの稜線接線と、隆起両直隣最低部の接線と交わる2点間の距離の、該プロファイル内のフィルム平面に平行な基準線と平行な成分を隆起の「幅」とする。

- 5 こうした高さが $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上で幅が $0.3\text{ mm}$ 以上となる隆起の有無を調べる。該当する隆起があった場合、製膜方向に垂直な方向の全幅での厚み測定を、検出測定位置の連続製膜方向に沿った近傍で繰り返す。そして始めに見つけた隆起と連続していると考えられる隆起をチェックする。連続隆起があった場合、順次、その位置の近傍で連続隆起の有無を調べる。該連続隆起の「高さ」が $1\text{ }\mu\text{m}$ 未満
- 10 になった場所を、該隆起の始点ないし終点とし、始点～終点間の距離を隆起の「長さ」とする。

- こうして、高さが $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上で幅が $0.3\text{ mm}$ 以上、なおかつ長さが $5\text{ cm}$ 以上のものを粗大筋状隆起と判定する。この粗大筋状隆起のサンプル内の数を数える。上記測定を $n=10$ 行い、得られた平均値を $1\text{ m}$ 幅当りの値に換算し(すなわち2倍し)、フィルム連続製膜方向に垂直な方向での幅 $1\text{ m}$ 当たり粗大筋状隆起の数とする。
- 15

#### <フィルムの製造方法>

##### (溶融押出キャストイング)

- 本発明の延伸フィルムは、前記樹脂組成物を溶融押出キャストイングにより製
- 20 膜した後、少なくとも一方向に延伸して得られる。

- 溶融押出には、従来公知の手法を用いることができる。具体的には、乾燥した前述の樹脂組成物ペレットを押出機に供給し、Tダイなどのスリットダイより溶融樹脂を押出す方法や、樹脂ペレットを供給した押出機にベント装置をセットし、溶融押出時に水分や発生する各種気体成分を排出しながら、同じくTダイなどの
- 25 スリットダイより溶融樹脂を押出す方法が挙げられる。

スリットダイより押出された溶融樹脂は、キャストされ冷却固化させる。冷却固化の方法は、従来公知のいずれの方法をとっても良いが、回転する冷却用ロール上に溶融樹脂をキャストし、シート化する方法が例示される。

冷却用ロールの表面温度は、樹脂組成物のガラス転移点 ( $T_g$ ) に対して、( $T_g - 100$ ) °C ~ ( $T_g + 20$ ) °C の範囲に設定するのが好ましい。また冷却用ロールの表面温度は、樹脂組成物のガラス転移点 ( $T_g$ ) に対して、( $T_g - 30$ ) °C ~ ( $T_g - 5$ ) °C の範囲に設定するのがさらに好ましい。冷却ロールの表面温度が上限を超える場合、溶融樹脂が固化する前に該ロールに粘着することがある。また冷却ロールの表面温度が下限に満たない場合、固化が速すぎて該ロール表面を滑ってしまい、得られるシートの平面性が損なわれることがある。

冷却ロールへのキャストイングの際に、溶融樹脂が冷却ロール上へ着地する位置近傍に金属ワイヤーを張り、電流を流すことで静電場を発生させ樹脂を帯電させて、冷却ロールの金属表面上への密着性を高めることも、フィルムの平面性を高める観点から有効である。その際、樹脂組成物中に、本発明の趣旨を超えない範囲で、電解質性物質を添加してもよい。

(延伸)

溶融押出キャストイングにより得られたシート状物は、少なくとも一方向に延伸することにより、フィルムの位相差特性を発現させ、製品収量の歩留を向上させることが可能となる。二軸延伸することが好ましい。

かかる延伸の方法は、従来公知の方法を用いることができ、例えば、縦方向（製膜方向、長手方向、MDと記載することがある。）に延伸する場合は、2個以上のロールの周速差を用いて延伸する方法や、オープン中で延伸する方法が挙げられる。

ロールを用いる延伸方法において、シート状物（未延伸フィルム）の加熱方法は、熱媒を通したロールで誘導加熱する方法、赤外加熱ヒーターなどで外部から加熱する方法が例示され、一つないし複数の方法をとってよい。またオープン中で延伸する方法において、シート状物（未延伸フィルム）の加熱方法は、フィルム両端をクリップ把持するテンター式オープンにてクリップ間隔を延伸倍率にしたがって広げる方法、オープン中にロール系を設置しフィルムをパスさせて延伸する方法、オープン中幅方向をまったくフリーにして入側と出側の速度差のみで延伸する方法が例示され、一つないし複数の方法をとってよい。

また、幅方向（製膜方向と垂直な方向、横方向、TDと記載することがある。）に延伸する場合は、クリップ把持式のテンターオープン中で入側と出側のクリップ搬送レール間隔に差をつけて延伸する方法が挙げられる。さらに、縦、横の二方向に延伸する場合は、縦、横両方向を逐次に延伸しても、同時に延伸しても良い。

#### （延伸温度）

本発明におけるフィルム延伸温度（Td）は、 $T_g \sim (T_g + 40^\circ\text{C})$ の温度とするのが好ましい。フィルムの延伸温度が $T_g$ （樹脂組成物のガラス転移点温度）に満たない場合は、延伸自体が困難であり、一方延伸温度が $(T_g + 40^\circ\text{C})$ を超える場合は、延伸に要する応力が極端に低くなってしまうため、未延伸原反に厚みのばらつきがある場合、薄い部分が延伸され易くなり過ぎ、延伸後には厚み斑がより誇張されてしまい、ひいては位相差のばらつきが大きくなってしまうことがある。

#### （延伸倍率）

延伸倍率は、 $R^{MD} > R^{TD}$ または $R^{TD} > R^{MD}$ であることが好ましい。 $R^{MD}$ は縦延伸倍率、 $R^{TD}$ は横延伸倍率を示す。これは、 $R^{MD}$ と $R^{TD}$ とが等しくなく、どちらか一方の延伸倍率が他方の延伸倍率よりも大きいことを意味する。また、これは必ずしも二軸延伸のみを意味するものではなく、縦方向に一軸延伸することにより、横方向が実質的に収縮し $R^{TD}$ の値が1未満になる場合をも包含する。

延伸倍率は、さらに好ましくは、 $|R^{MD}/R^{TD}|$ または $|R^{TD}/R^{MD}|$ が、1.0を超え5.0以下の範囲である。

より具体的には、 $R^{MD}$ が、1.0～1.8の範囲であることが好ましく、更に好ましくは1.2～1.6の範囲である。 $R^{MD}$ が小さすぎると所望の位相差が得られない場合がある。また $R^{MD}$ が大きすぎると、フィルム面内方向および厚み方向それぞれの方向において所望の位相差特性を得られないことがある。

また、 $R^{TD}$ は、1.5～3.5の範囲であることが好ましく、更に好ましくは1.5～3.0の範囲である。 $R^{TD}$ が小さすぎると所望の位相差が得られない場合がある。また $R^{TD}$ が大きすぎると、フィルム面内方向および厚み方向それぞれ



の方向において所望の位相差特性を得られないことがある。

(延伸速度)

延伸速度が5～5000%/分であることが好ましい。従って、延伸温度（T<sub>d</sub>）が、T<sub>g</sub>～（T<sub>g</sub>+40℃）の範囲であり、延伸速度が5～5000%/分であることが好ましい。

延伸したフィルムは、熱安定性向上などの必要に応じて、熱処理などの後加工を施しても良い。この後加工は、フィルム延伸工程に引き続き行っても良いし、別工程にて行っても良い。

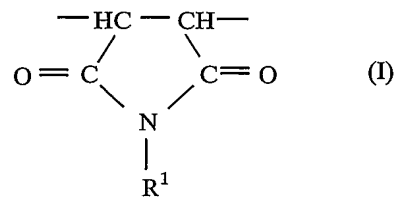
<積層体>

- 10 本発明の積層体は、延伸フィルム（X）およびその上に設けられた偏光子からなる。

偏光子は、ヨウ素または異方性染料を含有するポリビニルアルコールからなり、フィルム状である。異方性染料としては、コンゴーレッド、メチレンブルー、スチルベン染料および1，1'-ジエチル-2，2'-シアニンクロライド等が挙げられる。

該積層体は、偏光子の上にさらに他のフィルムが設けられた積層体を包含する。他のフィルムとして、樹脂組成物を溶融押出キャストイングにより製膜した後、少なくとも一方向に延伸されてなる延伸フィルム（Y）であり、

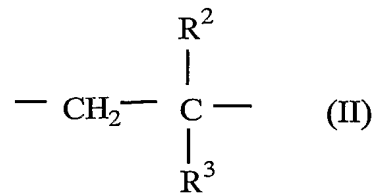
（1-c）樹脂組成物が、下記式（I）



式中、R<sup>1</sup>は、水素原子、炭素数1～6のアルキル基または1価の芳香族炭化水素基である、

で表される繰り返し単位40～60モル%と、

下記式（II）



式中、 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～6のアルキル基である、

5 重合体（A）およびアクリロニトリル単位を21～45重量%含むアクリロニトリル・スチレン共重合体（B）からなり、

Aの含有量が65重量%を超え75重量%未満であり、Bの含有量が25重量%を超え35重量%未満であり、

（2-c）面内方向の550nmにおける最大位相差（ $R_p$ ）が下記式

10  $R_p < 10 \text{ nm}$

を満たす延伸フィルム（Y）が好ましい。延伸フィルム（Y）は、延伸フィルム（X）と同様の方法で製造することができる。

従って、積層体は、以下の構成のものが例示される。Xは延伸フィルム（X）、Yは延伸フィルム（Y）、Pは偏光子を示す。

- 15
- ・ X/P
  - ・ X/P/フィルム
  - ・ X/P/Y

本発明の積層体は、液晶表示装置の偏光板として好適に用いることができる。

#### <液晶表示装置>

20 本発明の液晶表示装置は、液晶セル（LC）およびその両面に配置された上記積層体からなる。積層体の延伸フィルム（X）を液晶セルに接するように配置することが好ましい。液晶表示装置には、プリズムシート（PS）、拡散フィルム（DF）をさらに積層することが好ましい。

従って、液晶表示装置は、以下の構成のものが例示される。

- 25
- ・ Y/P/X/LC/X/P/Y

・ Y / P / X / L C / X / P / Y / P S / D F

## 実施例

以下、実施例に基づき本発明を説明する。各特性値ならびに評価法は下記の方

5 法によって測定、評価した。

### (1) 樹脂組成物の同定および分子量

得られた樹脂組成物ペレットの一部を用い、溶媒として重クロロホルムを使用して $^1\text{H}$ 、 $^{13}\text{C}$ -NMR測定（日本電子製 装置名 JNM-alpha 600）、およびGC/MS測定（横河アナリティカル製 装置名 HP 5973）によつて構成成分の同定および定量を行った。また、樹脂組成物ペレットの他の一部を  
10 Polymer Laboratories 製のGPC（ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー）（装置名 PL-EMD 960）を用いて測定（溶媒：クロロホルム、検量線作成：単分散ポリスチレン）し、分子量の定量を行った。

### (2) フィルム面内方向の550 nmにおける最大位相差（R<sub>p</sub>）

15 得られた延伸フィルムを、エリプソメーター（日本分光製 装置名M-220）を用い、550 nm単色光をフィルム面に垂直に照射し、透過光を測定する。フィルムを固定した試料台を、光軸を中心に光軸に対して垂直な面内にて回転させながら透過光を測定し、測定値から計算される位相差が最大となる角度における位相差を、面内方向の最大位相差（nm）とした。

### 20 (3) フィルム厚み方向の550 nmにおける位相差（R<sub>t h</sub>）

得られた延伸フィルムを、エリプソメーター（日本分光製 装置名 M-220）を用いた550 nm単色光の入射角度を変化させた透過光測定に供し、フィルムを固定した試料台を、光軸を中心に光軸に対して垂直な面内にて回転させて、面内方向の最大位相差が得られる回転角にて固定し、続いて、試料台を面内方向  
25 の最大位相差を与える配向主軸（遅相軸）と平行で、かつ光軸を通る直線を中心に、0°（光軸に対して垂直な角度）～50°の範囲で回転させ（該角度を「あおり角」とする）、透過光を測定する。得られた位相差データを、あおり角に対してプロットし、あおり角の関数でフィッティングすることで、面内の遅相軸方向、面

内の遅相軸に垂直な方向、および厚み方向のそれぞれの間の位相差間の相関式を導く。得られた各方向の位相差の関係式、フィルム厚み測定値、および別法にて求めたフィルム平均屈折率（ $n(550)$ ）から、面内の遅相軸方向、面内の遅相軸に垂直な方向、および厚み方向それぞれの屈折率を求めた上で、厚み方向位相差（nm）を下記式にしたがって求めた。

$$R_{th} \text{ (nm)} = d \text{ (nm)} \times ((n_x + n_y) / 2 - n_z)$$

（式中、 $R_{th}$ は厚み方向位相差、 $d$ はフィルム厚み、 $n_x$ は面内の遅相軸方向の屈折率、 $n_y$ は面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率、 $n_z$ は厚み方向の屈折率をそれぞれ表す）

- 10     なお、フィルム平均屈折率については、波長473 nm、633 nm、830 nmの3種のレーザー光にて、屈折率計を用いて測定された平均屈折率を、下記のC a u c h yの屈折率波長分散フィッティング式

$$n(\lambda) = a / \lambda^4 + b / \lambda^2 + c$$

- （式中、 $n(\lambda)$ は波長 $\lambda$ （nm）における平均屈折率、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ はそれぞれ定数、 $\lambda$ は測定波長（nm）をそれぞれ表す）  
15     に代入し、得られた3つの式から $a$ 、 $b$ 、 $c$ の定数を求め、しかる後に550 nmにおける平均屈折率（ $n(550)$ ）を算出した。

#### （4）フィルムの透湿度

- 得られたフィルムを用い、J I S Z-0208に準拠して測定した。透湿面積  
20     は30 cm<sup>2</sup>、40℃、相対湿度90%の雰囲気下での透湿を測定した。

#### （5）フィルム厚み

マイクロメーターを用いて測定した。アンリツ製K-402B型試料台にフィルムを載せて触針を押し当て、該触針の変位データをアンリツ製KG3001型インジケーターにて厚み（ $\mu$ m）データとした。

- 25     （6）偏光板の耐久性

各偏光板を、80℃、相対湿度90%の雰囲気下に1000時間放置した。処理前後の偏光度の変化から、下記に従って評価した。

○： 処理後の偏光度が処理前の95%以上

×： 処理後の偏光度が処理前の95%未満

(7) 偏光板の視野角特性

偏光板を液晶セルの両面に、液晶セルの近接する基板面のラビング軸方向と偏光板透過軸が直交するように貼合し、パネルで評価した。液晶セルは、市販のVAモードLCDモニター、IPSモードLCDモニターのあらかじめ貼合されていた光学補償フィルムおよび偏光板を剥がしたものを使用した。こうして得られた液晶表示装置を、ELDIM社製EZ-contrastにより視野角を測定した。測定された視野角から、下記に従って評価した。

○： 液晶セルの白表示と黒表示時のコントラスト比が10以上を示すパネル面に対する法線方向からの傾き角の範囲が、正対方向に対し上下左右ともに60°以上

×： 液晶セルの白表示と黒表示時のコントラスト比が10以上を示すパネル面に対する法線方向からの傾き角の範囲が、正対方向に対し上下左右ともに60°未満

15 (8) 粗大筋状隆起数

得られたフィルムのうち、押出開始から8時間後のフィルムサンプルを採取し、任意の位置で、フィルム連続製膜方向と製膜方向に垂直な方向に沿った正方形(50cm×50cm)にサンプリングする。そして連続製膜方向に沿った5cmおきに、製膜方向に垂直な方向の全幅でフィルムの厚みを測定する。

20 得られた厚みプロファイルの中に隆起部がある場合に、その高さ、幅、長さは次のように定義する。i) 隆起頂点から該プロファイル内の隆起部を除くフィルム平面に平行な基準線に下した垂線上の、隆起頂点から隆起両直隣最低部の接線までの距離を隆起の「高さ」とする。ii) プロファイル中で隆起部の両側の稜線において、傾きが最大となるそれぞれの稜線接線と、隆起両直隣最低部の接線と交わる2点間の距離の、該プロファイル内のフィルム平面に平行な基準線と平行な成分を隆起の「幅」とする。

25 こうした高さが10μm以上で幅が0.3mm以上となる隆起の有無を調べる。該当する隆起があった場合、製膜方向に垂直な方向の全幅での厚み測定を、検出

測定位置の連続製膜方向に沿った近傍で繰り返す。そして初めに見つけた隆起と連続していると考えられる隆起をチェックする。連続隆起があった場合、順次、その位置の近傍で連続隆起の有無を調べる。該連続隆起の「高さ」が1  $\mu$ m未満になった場所を、該隆起の始点ないし終点とし、始点～終点の距離を隆起の「長さ」とする。

5 こうして、高さが10  $\mu$ m以上で幅が0.3 mm以上、なおかつ長さが5 cm以上のものを粗大筋状隆起と判断する。この粗大筋状隆起のサンプル内の数を数える。上記測定を10回行い、得られた平均値を1 m幅当りの値に換算し（すなわち2倍し）、フィルム連続製膜方向に垂直な方向での幅1 m当たり粗大筋状隆起  
10 の数とする。

#### 実施例 1

##### (共重合体 (A1))

15 攪拌機、窒素導入管、温度計および脱気管の付いたオートクレーブに、N-メチルマレイミド12 kg、t-ブチルパーオキシネオデカノエート8 gおよびトルエンとメタノールの混合溶媒(1:1 重量比)150リットルを仕込み、窒素で数回パージした後、イソブテン85リットルを仕込み、60℃で6時間反応を行った。得られた粒子を遠心分離した後、乾燥した。得られたN-メチルマレイミド・イソブテン共重合体(共重合体(A1))の分子量(Mn)は、95000  
20 で、マレイミド単位およびイソブテン単位は、それぞれ50モル%であった。

##### (共重合体 (B))

アクリロニトリル・スチレン共重合体(共重合体(B))を用意した。共重合体(B)中のアクリロニトリル含有量は30重量%である。

##### (樹脂組成物の調製)

25 共重合体(A1)85重量部と、共重合体(B)15重量部とを振り混ぜ、2軸押出機を用い、窒素下、混練押出しを行い、樹脂組成物のペレット(I)を得た。そのTgは、117℃であった。

##### (製膜)

ペレット（I）を110℃で10時間乾燥後、押出機に供給し、熔融温度295℃で熔融後フィルターで濾過し、単層ダイから押出した。この熔融物を、回転冷却ドラム上に押出し、全厚み176  $\mu\text{m}$ の未延伸フィルムを得た。

（延伸）

- 5 得られた未延伸フィルムをステンターに供給し、150℃にて縦方向に15%/分にて1.1倍に、横方向に150%/分にて2.0倍に同時に延伸し、80  $\mu\text{m}$ 厚みの二軸延伸フィルム（1）を得た。得られた二軸延伸フィルムの特性を表1に示す。また、二軸延伸フィルム（1）の粗大筋状隆起数は0.1本/1m幅であった。

#### 10 実施例 2

実施例1と同様にして、厚み160  $\mu\text{m}$ の未延伸フィルムを得た後、得られた未延伸フィルムをステンターに供給し、150℃にて横方向に150%/分にて2.2倍に延伸し、80  $\mu\text{m}$ 厚みの一軸延伸フィルム（2）を得た。その特性を表1に示す。

#### 15 実施例 3

- 実施例1と同様にして、厚み192  $\mu\text{m}$ の未延伸フィルムを得たのち、未延伸フィルムを125℃に予熱し、低速ローラーと高速ローラーの間で15mm上方より800℃の表面温度の赤外線ヒーター1本にて加熱して縦方向に200%/分の延伸速度にて1.2倍に延伸した。続いてステンターに供給し、延伸温度150℃、横方向に150%/分の延伸速度にて2.0倍に逐次延伸し、80  $\mu\text{m}$ 厚みの二軸延伸フィルム（3）を得た。その特性を表1に示す。

#### 実施例 4

- 25 実施例1と同様にして、厚み180  $\mu\text{m}$ の未延伸フィルムを得たのち、未延伸フィルムを125℃に予熱し、低速ローラーと高速ローラーの間で15mm上方より900℃の表面温度の赤外線ヒーター1本にて加熱して縦方向に200%/分の延伸速度にて1.5倍に延伸した。続いてステンターに供給し、延伸温度150℃、横方向に150%/分の延伸速度にて1.5倍に逐次延伸し、80  $\mu\text{m}$ 厚みの二軸延伸フィルム（4）を得た。その特性を表1に示す。

## 実施例 5

7 8 重量部の共重合体 (A 1) および 2 2 重量部の共重合体 (B) を用いた以外は、実施例 3 と同様の操作を繰り返して、8 0  $\mu$ m 厚みの二軸延伸フィルム (5) を得た。その特性を表 1 に示す。

## 5 実施例 6

9 0 重量部の共重合体 (A 1) および 1 0 重量部の共重合体 (B) を用いた以外は、実施例 3 と同様の操作を繰り返して、8 0  $\mu$ m 厚みの二軸延伸フィルム (6) を得た。その特性を表 1 に示す。

## 実施例 7

- 10 5 5 重量部の共重合体 (A 1) と 4 5 重量部の共重合体 (B) を用いた以外は、実施例 1 と同様の操作を繰り返して、8 0  $\mu$ m 厚みの二軸延伸フィルム (7) を得た。その特性を表 1 に示す。

## 実施例 8

(共重合体 (A 2))

- 15 攪拌機、窒素導入管、温度計および脱気管の付いたオートクレーブに、オートクレーブに、N-フェニルマレイミド 1 2 k g、t-ブチルパーオキシネオデカノエート 8 g およびトルエンとメタノールの混合溶媒 (1 : 1 重量比) 1 5 0 リットルを仕込み、窒素で数回パージした後、イソブテン 8 5 リットルを仕込み、6 0  $^{\circ}$ C で 6 時間反応を行った。得られた粒子を遠心分離後乾燥した。得られた N-フェニルマレイミド・イソブテン共重合体 (共重合体 (A 2)) の分子量 (Mn) 20 は 9 5 0 0 0 で、マレイミド単位およびイソブテン単位は、それぞれ 6 0 モル% および 4 0 モル% であった。

(樹脂組成物の調製)

- 共重合体 (A 2) 5 0 重量部と、共重合体 (B) 5 0 重量部とを振り混ぜ、2 25 軸押出機を用い、窒素下、混練押出しを行い、樹脂組成物のペレット (I I) を得た。樹脂組成物の T g は、1 2 8  $^{\circ}$ C であった。

(製膜)

ペレット (I I) を 1 1 0  $^{\circ}$ C で 1 0 時間乾燥後、押出機に供給し、熔融温度 2



9 5℃で溶融後フィルターで濾過し、単層ダイから押出した。この溶融物を、回転冷却ドラム上に押出し、全厚み176 μmの未延伸フィルムを得た。

(延伸)

得られた未延伸フィルムをステンターに供給し、150℃にて縦方向に15%  
5 /分にて1.1倍に、横方向に150%/分にて2.0倍に同時に延伸し、80 μm厚みの二軸延伸フィルム(8)を得た。その特性を表1に示す。

比較例 1

原料として、ペレット(I)の代わりに、市販のCOP樹脂(日本ゼオン(株)製、ゼオネックス)を用いた以外は、実施例1と同様の手法にて、押出速度および回転冷却ドラム速度を調整することで、厚み40 μmの未延伸フィルム(CE  
10 1)を得た。その特性を表1に示す。

比較例 2

原料として、ペレット(I)の代わりに、市販のCOP樹脂(日本ゼオン(株)製、ゼオネックス)を用いた以外は、実施例1と同様の手法にて、押出速度および回転冷却ドラム速度を調整することで、厚み88 μmの未延伸フィルムを得、  
15 さらに実施例1と同様に延伸し、40 μm厚みの二軸延伸フィルム(CE 2)を得た。その特性を表1に示す。

比較例 3

市販のTACフィルム(富士写真フィルム(株)製、フジタック、厚み80 μ  
20 m)を、フィルム(CE 3)とした。その特性を表1に示す。

表1

	共重合体 (A)		共重合体 (B)		延伸方法	R <sup>TD</sup>		厚み μm	R <sub>p</sub> nm	R <sub>t h</sub> nm	透湿度 g/m <sup>2</sup> ・日
	種類	重量%	重量%	重量%		倍	倍				
実施例 1	A1	85	15		同時	1.1	2.0	80	120	250	60
実施例 2	A1	85	15		一軸	—	2.2	80	385	45	60
実施例 3	A1	85	15		逐次	1.2	2.0	80	75	370	60
実施例 4	A1	85	15		逐次	1.5	1.5	80	12	380	60
実施例 5	A1	78	22		逐次	1.2	2.0	80	95	225	60
実施例 6	A1	90	10		逐次	1.2	2.0	80	165	285	60
実施例 7	A1	55	45		同時	1.1	2.0	80	350	—40	60
実施例 8	A2	50	50		同時	1.1	2.0	80	300	20	60
比較例 1	COP				未延伸	—	—	40	80	240	0.5
比較例 2	COP				—	1.1	2.0	40	0.3	5	0.5
比較例 3	TAC				—	—	—	80	0.2	30	480

## 実施例 9

## (偏光板の作製)

共重合体 (A 1) 70 重量部と、共重合体 (B) 30 重量部とを振り混ぜ、2  
軸押出機を用い、窒素下、混練押出しを行い、ペレット (I I I) とした (T g  
5 1 1 0℃)。得られたペレット (I I I) を実施例 1 と同様の方法で熔融、押出、  
延伸し、80  $\mu$ m 厚みの二軸延伸フィルム (R) を得た。フィルム (R) の R p  
は 7 nm、R t h は 15 nm、透湿度は 60 g/m<sup>2</sup>・日であった。

次に、実施例 1 にて得られたフィルム (1) およびフィルム (R)、さらに、ポ  
リビニルアルコール偏光膜を貼合せ、偏光板を作製し、その耐久性を評価した。

- 10 ポリビニルアルコール偏光膜は、厚さ 120  $\mu$ m のポリビニルアルコールフィ  
ルムをヨウ素 1 部、ヨウ化カリウム 2 部、ホウ酸 4 部を含む水溶液に浸漬し、5  
0℃で 4 倍に延伸することにより得た。

また、この偏光膜に上述のフィルム (1) およびフィルム (R) を貼合せ、偏  
光板を得る手順は、下記のとおりである。

- 15 (1) 30 cm×18 cm の長方形の形状に切り取った、上述のフィルム (1)  
およびフィルム (R) のそれぞれの片側の表面に、コロナ放電処理 (処理電力＝  
800 W (200 V、4 A)、電極～フィルム間距離＝1 mm、処理速度＝12 m  
／分) を施す。

- (2) フィルム (1) およびフィルム (R) と同じサイズに調整した偏光膜 (偏  
光子) を固形分 2 質量% のポリビニルアルコール接着剤槽中に 1～2 秒間浸漬す  
20 る。

- (3) 偏光膜 (偏光子) に付着した過剰の接着剤を軽く取り除き、偏光子を、フ  
ィルム (1) およびフィルム (R) が挟みこむ状態となるよう、フィルム (1)  
のコロナ処理面上にのせ、更にフィルム (R) のコロナ処理面と接着剤とが接す  
25 る様に積層し配置する。フィルム (1) およびフィルム (R) の熔融押出製膜時  
の押出方向と偏光子の延伸方向は平行である。

- (4) ハンドローラで、偏光膜、フィルム (1) およびフィルム (R) からなる  
積層体の端部から過剰の接着剤および気泡を取り除き貼合せる。ハンドローラは、

20～30 N/cm<sup>2</sup>の圧力をかけて、ローラスピードは約2 m/分とした。

(5) 80℃の乾燥器中に得られた試料を2分間放置し、偏光板を作製した。

(液晶表示装置の作製)

- 次いで、偏光板を液晶セルの両面に、液晶セルの近接する基板面のラビング軸方向と偏光板透過軸が直交し、偏光板のフィルム(1)と液晶セルとが接するように貼合し、液晶表示装置を作製した。液晶セルは、市販のVAモードLCDモニター、IPSモードLCDモニターに貼合されていた光学補償フィルムおよび偏光板を剥がしたものを使用した。得られた液晶表示装置の視野角特性を評価した。

10 実施例10～19、比較例4～6

フィルム(1)およびフィルム(R)の代わりに、表2に記載した各フィルムを用いてポリビニルアルコール偏光膜の両側に貼合わせた以外は、実施例9と同様にして偏光板およびそれを用いた液晶表示装置を作製した。それらの耐久性、視野角特性の評価結果を表2に示す。

- 15 なお、実施例17～19および比較例5においては、フィルム(CE3)は、コロナ処理の代わりにアルカリ処理を行なった。アルカリ処理とは、フィルムを2モル/リットルの水酸化ナトリウム溶液に60℃の温度条件下で1分間浸漬後、水洗して乾燥させることで、フィルムに表面処理を施すことを意味する。

- 表2から分かるように、本発明の偏光板は著しく耐久性が改善されている。また本発明の偏光板を用いた液晶表示装置は、著しく視野角が改善されている。
- 20

表 2

	偏光板		偏光板耐久性	視野角特性	
	延伸フィルム (X)	延伸フィルム (Y)		使用LCD	評価結果
実施例 9	フィルム (1)	フィルム (R)	○	VA	○
実施例 10	フィルム (2)	フィルム (R)	○	VA	○
実施例 11	フィルム (3)	フィルム (R)	○	VA	○
実施例 12	フィルム (4)	フィルム (R)	○	VA	○
実施例 13	フィルム (5)	フィルム (R)	○	VA	○
実施例 14	フィルム (6)	フィルム (R)	○	VA	○
実施例 15	フィルム (7)	フィルム (R)	○	IPS	○
実施例 16	フィルム (8)	フィルム (R)	○	IPS	○
実施例 17	フィルム (1)	フィルム (CE3) *	○	VA	○
実施例 18	フィルム (7)	フィルム (CE3) *	○	IPS	○
実施例 19	フィルム (8)	フィルム (CE3) *	○	IPS	○
比較例 4	フィルム (R)	フィルム (R)	○	VA	×
				IPS	×
比較例 5	フィルム (CE3) *	フィルム (CE3) *	×	VA	×
				IPS	×
比較例 6	フィルム (CE1)	フィルム (CE2)	×	VA	○

\* : コロナ処理の代わりにアルカリ処理を行った。

### 産業上の利用可能性

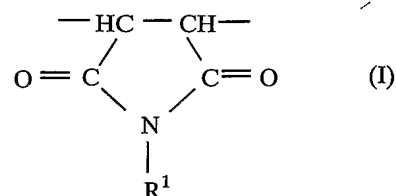
本発明の延伸フィルムは、光学異方性が適正なものに制御され、適度の透湿度を有するので、位相差板や位相差機能つき偏光板支持体などの光学部材に好適に使用される。また本発明の延伸フィルムを用いた光学部材は、VAモード、IPSモードの液晶セルを有する液晶表示装置に好適に使用することができる。

5

## 請 求 の 範 囲

1. 樹脂組成物を、熔融押出キャストイングにより製膜した後、少なくとも一方向に延伸されてなる延伸フィルム（X）であり、

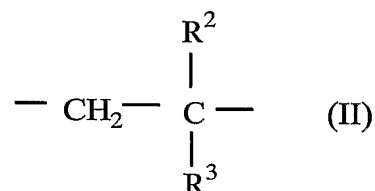
5 (1) 樹脂組成物は、下記式（I）



式中、 $\text{R}^1$ は、水素原子、炭素数1～6のアルキル基または1価の芳香族炭化水素基である、

で表される繰り返し単位40～60モル%と、

10 下記式（II）



式中、 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～6のアルキル基である、

で表される繰り返し単位60～40モル%とからなるマレイミド・オレフィン共  
15 重合体（A）およびアクリロニトリル単位を21～45重量%含むアクリロニトリル・スチレン共重合体（B）からなり、

Aの含有量は50重量%以上99重量%以下で、Bの含有量は1重量%以上50重量%以下であり、

(2) 面内方向の550nmにおける最大位相差（ $\text{R}_p$ ）が下記式

20  $10\text{nm} < \text{R}_p \leq 400\text{nm}$

を満たし、

(3) 厚み方向の550nmにおける位相差（ $\text{R}_{th}$ ）が、下記式

$$0 \text{ nm} < |R_{th}| \leq 400 \text{ nm}$$

を満たす延伸フィルム。

2. (1-a)樹脂組成物中の、Aの含有量は75重量%を超え99重量%以下で、  
 5 Bの含有量は1重量%以上25重量%未満であり、  
 (2-a) $R_p$ が下記式

$$10 \text{ nm} < R_p \leq 250 \text{ nm}$$

を満たし、

(3-a) $R_{th}$ が、下記式

10 
$$0 \text{ nm} < R_{th} \leq 400 \text{ nm}$$

を満たす請求項1記載の延伸フィルム。

3. (1-b)樹脂組成物中の、Aの含有量は50重量%を超え65重量%以下で、  
 Bの含有量は35重量%以上50重量%未満であり、  
 15 (2-b) $R_p$ が下記式

$$10 \text{ nm} \leq R_p \leq 400 \text{ nm}$$

を満たし、

(3-b) $R_{th}$ が、下記式

$$0 \text{ nm} < |R_{th}| \leq 400 \text{ nm}$$

- 20 を満たす請求項1記載の延伸フィルム。

4. 下記式

$$n_y < n_z < n_x, \text{ および}$$

$$0.3 \leq \{(n_x - n_z) / (n_x - n_y)\} \leq 0.9$$

- 25 式中、 $n_x$ は550nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率、  
 $n_y$ は550nmにおける面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率、  
 $n_z$ は550nmにおける厚み方向の屈折率をそれぞれ表す、  
 を満たす請求項3記載の延伸フィルム。



5. 延伸倍率は、下記式

$$R^{MD} > R^{TD} \text{ または } R^{TD} > R^{MD}$$

式中、 $R^{MD}$ は縦延伸倍率、 $R^{TD}$ は横延伸倍率である、

5 を満たす請求項 1 記載の延伸フィルム。

6.  $|R^{MD}/R^{TD}|$  または  $|R^{TD}/R^{MD}|$  が、1.0 を超え 5.0 以下の範囲にある請求項 5 記載の延伸フィルム。

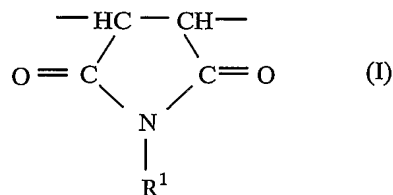
10 7. 二軸延伸された請求項 1 記載の延伸フィルム。

8. 高さ  $10 \mu\text{m}$  以上、幅  $0.3 \text{ mm}$  以上、長さ  $5 \text{ cm}$  以上の粗大筋状隆起の数が、横方向での幅  $1 \text{ m}$  当たり 1 本以下である請求項 1 記載の延伸フィルム。

15 9. 透湿度が  $5 \sim 250 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{日})$  である請求項 1 記載の延伸フィルム。

10. 樹脂組成物を、熔融押出キャストニングにより製膜した後、少なくとも一方向に延伸することを含む延伸フィルムの製造方法であり、

(1) 樹脂組成物は、下記式 (I)

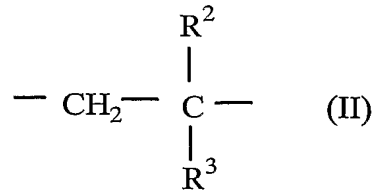


20

式中、 $R^1$ は、水素原子、炭素数 1～6 のアルキル基または 1 価の芳香族炭化水素基である、

で表される繰り返し単位  $40 \sim 60$  モル%と、

下記式 (II)



式中、 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～6のアルキル基である、

5 5 で表される繰り返し単位60～40モル%とからなるマレイミド・オレフィン共重合体（A）およびアクリロニトリル単位を21～45重量%含むアクリロニトリル・スチレン共重合体（B）からなり、

Aの含有量は50重量%以上99重量%以下で、Bの含有量は1重量%以上50重量%以下であり、

（2）延伸倍率は、下記式

$$10 \quad R^{\text{MD}} > R^{\text{TD}} \text{ または } R^{\text{TD}} > R^{\text{MD}}$$

式中、 $R^{\text{MD}}$ は縦延伸倍率、 $R^{\text{TD}}$ は横延伸倍率である、  
を満たす延伸フィルムの製造方法。

11. 二軸延伸する請求項10記載の製造方法。

15

12.  $|R^{\text{MD}}/R^{\text{TD}}|$  または  $|R^{\text{TD}}/R^{\text{MD}}|$  が、1.0を超え5.0以下の範囲にある請求項10記載の製造方法。

13.  $R^{\text{MD}}$ が1.0～1.8の範囲であり、 $R^{\text{TD}}$ が1.5～3.5の範囲である請求項10記載の製造方法。

20

14. 延伸温度（Td）が、 $T_g \sim (T_g + 40^\circ\text{C})$ の範囲であり、ここで $T_g$ は樹脂組成物のガラス転移点温度である、延伸速度が5～5000%/分である請求項10記載の製造方法。

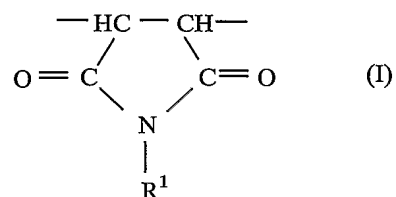


15. 請求項1記載の延伸フィルム(X)およびその上に設けられた偏光子からなる積層体。

16. 偏光子が、ヨウ素または異方性染料を含有するポリビニルアルコールからなるフィルムである請求項15記載の積層体。

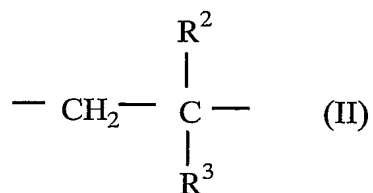
17. 偏光子の上にさらにフィルムが設けられた請求項15記載の積層体。

18. フィルムが、樹脂組成物を溶融押出キャストリングにより製膜した後、  
 10 少なくとも一方向に延伸されてなる延伸フィルム(Y)であり、  
 (1-c)樹脂組成物が、下記式(I)



式中、 $\text{R}^1$ は、水素原子、炭素数1～6のアルキル基または1価の芳香族炭化水素基である、

15 で表される繰り返し単位40～60モル%と、  
 下記式(II)



式中、 $\text{R}^2$ および $\text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～6のアルキル基である、

20 で表される繰り返し単位60～40モル%とからなるマレイミド・オレフィン共重合体(A)およびアクリロニトリル単位を21～45重量%含むアクリロニトリル・スチレン共重合体(B)からなり、

Aの含有量が6.5重量%を超え7.5重量%未満であり、Bの含有量が2.5重量%を超え3.5重量%未満であり、

(2-c)面内方向の550 nmにおける最大位相差 ( $R_p$ ) が下記式

$$R_p < 10 \text{ nm}$$

5    を満たす延伸フィルムである請求項1.5記載の積層体。

19. 偏光板である請求項1.5記載の積層体。

20. 液晶セルおよびその両面に配置された請求項1.5記載の積層体からなる液  
10    晶表示装置。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002365

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08J5/18, B29C55/02, C08L35/00, G02B5/30//C08L25:12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08J5/18, B29C55/02, C08L35/00, G02B5/30//C08L25:12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2001/037007 A1 (Kaneka Corp.), 25 May, 2001 (25.05.01), Claims; page 10, lines 10 to 17; page 20, lines 2 to 14; page 24, line 4 to page 25, line 23; page 29, line 25 to page 30, line 20; page 37, line 11 to page 38, line 17; page 45, line 16 to page 46, line 23; page 63, table 5, example 25 & EP 1160591 A1 Page 6, Par. Nos. [0051] to [0052]; page 10, Par. Nos. [0089] to [0091]; page 12, Par. Nos. [0110] to [0117]; page 14, Par. Nos. [0130] to [0134]; page 17, Par. Nos. [0161] to [0165]; page 20, Par. Nos. [0195] to [0202]; page 32, table 5, example 25 & KR 2001101475 A & CN 1337009 A & JP 2001-343529 A	1-7, 10-20 8, 9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
12 April, 2005 (12.04.05)

Date of mailing of the international search report  
10 May, 2005 (10.05.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002365

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2003-026942 A (Kaneka Corp.), 29 January, 2003 (29.01.03), Claims; pages 12 to 13, Par. No. [0122] (Family: none)	8
Y	JP 2004-045893 A (Kaneka Corp.), 12 February, 2004 (12.02.04), Claims; page 4, Par. No. [0013] (Family: none)	9
P,A	JP 2004-315788 A (Tosoh Corp.), 11 November, 2004 (11.11.04), Claims; page 4, Par. No. [0013] & US 2004/0190138 A1	1-20
P,A	JP 2004-346199 A (Tosoh Corp.), 09 December, 2004 (09.12.04), Claims; page 4, Par. No. [0013] (Family: none)	1-20

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> C 08 J 5 / 18 B 29 C 55 / 02 C 08 L 35 / 00 G 02 B 5 / 30 // C 08 L 25 : 12

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> C 08 J 5 / 18 B 29 C 55 / 02 C 08 L 35 / 00 G 02 B 5 / 30 // C 08 L 25 : 12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	WO 2001/037007 A1 (鍾淵化学工業株式会社) 2001. 05. 25, 特許請求の範囲, 第10頁第10-17行, 第20頁第2- 14行, 第24頁第4行-第25頁第23行, 第29頁第25行-第30 頁第20行第37頁第11行-第38頁第17行, 第45頁第16行-第 46頁第23行, 第63頁表5実施例25&EP 1160591 A1, 第6頁 [0051] - [0052], 第10頁 [0089] - [0091 ], 第12頁 [0110] - [0117], 第14頁 [0130] - [0 134], 第17頁 [0161] - [0165], 第20頁 [0195]	1-7, 10-20 8, 9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12. 04. 2005

国際調査報告の発送日

10.05.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

天野 宏樹

4 J

9 2 7 2

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	—[0202], 第32頁表5実施例25&KR 2001101475 A &CN 1337009 A&JP 2001-343529 A	
Y	JP 2003-026942 A (鐘淵化学工業株式会社) 2003. 0 1. 29, 特許請求の範囲, 第12-13頁【0122】 (ファミリーなし)	8
Y	JP 2004-045893 A (鐘淵化学工業株式会社) 2004. 0 2. 12, 特許請求の範囲, 第4頁【0013】 (ファミリーなし)	9
PA	JP 2004-315788 A (東ソー株式会社) 2004. 11. 1 1, 特許請求の範囲, 第4頁【0013】&US 2004/019013 8 A1	1-20
PA	JP 2004-346199 A (東ソー株式会社) 2004. 12. 0 9, 特許請求の範囲, 第4頁【0013】 (ファミリーなし)	1-20